PAT-NO:

JP02000203804A

DOCUMENT-IDENTIFIER:

JP 2000203804 A

TITLE:

FUEL REFORMER AND REFORMING

OF FUEL

PUBN-DATE:

July 25, 2000

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

AOYAMA, SATOSHI

N/A

ARAKI, YASUSHI

N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

TOYOTA MOTOR CORP

N/A

APPL-NO:

JP11008431

APPL-DATE:

January 14, 1999

INT-CL (IPC): C01B003/48, C01B003/34, H01M008/04

, H01M008/06

## ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a compact fuel reformer good in efficiency.

SOLUTION: This fuel reformer 20 is obtained by designing a shift reactional part 32 so as to provide about 40% based on the maximum capacity of a reforming part 30 as the maximum capacity. Air is fed from a blower 46 to a hydrogen-rich gas according to a feed rate in excess of the maximum capacity of the shift reactional part 32 when the hydrogen-rich gas is fed to the shift reactional part 32 at the high feed rate in excess of the maximum capacity. Thereby, an oxidizing reaction of carbon monoxide is carried out in addition to the shift reaction. The concentration of the carbon monoxide in the hydrogenrich gas at an outlet of the shift reactional part 32 is regulated to a desired concentration or below by controlling the feed rate of the air. As a result, the fuel reformer 20 can be compacted and an energy required for heating up at the time of starting can be reduced.

COPYRIGHT: (C) 2000, JPO

## (19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2000-203804 (P2000-203804A)

(43)公開日 平成12年7月25日(2000.7.25)

(51) Int.Cl.7		識別記号	FΙ			テ	-7]-ド(参考)
C 0 1 B	3/48		C01B	3/48		4	G 0 4 0
	3/34			3/34		5	H027
H01M	8/04		H01M	8/04		Z	
	8/06			8/06		G	
			審査請求	未請求	請求項の数14	OL	(全 9 頁)
(21)出願番号	<b>,</b>	特顧平! I —843I	(71)出顧人	000003207 トヨタ自動車株式会社			
(22)出顧日		平成11年1月14日(1999.1.14)		爱知県豊	田市トヨタ町	1番地	
			(72)発明者	青山 智	7		
				爱知県豊	田市トヨタ町	1番地	トヨタ自動
				車株式会	社内		

(72)発明者 荒木 康 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動 車株式会社内(74)代理人 100075258

护理士 吉田 研二 (外2名)

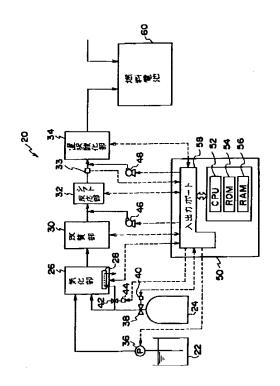
最終頁に続く

## (54) 【発明の名称】 燃料改質装置および燃料改質方法

## (57)【要約】

【課題】 コンパクトで効率の良い燃料改質装置を提供する。

【解決手段】 改質部30の最大能力に対して40%程度を最大能力とするようシフト反応部32を設計する。シフト反応部32にその最大能力を越えて水素リッチガスが供給されるときには、その供給量に応じて水素リッチガスにブロワ46から空気を供給し、シフト反応に加えて一酸化炭素の酸化反応を行なう。空気の供給量の制御によりシフト反応部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所望の濃度以下にする。この結果、燃料改質装置20をコンパクトなものにすると共に、起動時に必要な昇温のためのエネルギーを小さくすることができる。



#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭化水素系からなる燃料を水素リッチな 燃料とする燃料改質装置であって、

前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質部と、

該改質部の最大能力に対して所定の割合を最大能力とし、該改質部から供給される前記水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応部と、

該シフト反応部に酸素を含有する酸化ガスを供給する酸 10 化ガス供給手段と、

前記改質部から前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最大能力に対する超過を検出する能力超過検出手段と、

該超過を検出したとき、前記酸化ガス供給手段により前 記シフト反応部に前記酸化ガスが供給されるよう該酸化 ガス供給手段を制御する酸化ガス供給制御手段とを備え る燃料改質装置。

【請求項2】 前記酸化ガス供給制御手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスに含まれる一酸 20 化炭素に対して該シフト反応部に供給される酸化ガスに含まれる酸素が所定のモル比となるよう前記酸化ガス供給手段を制御する手段である請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項3】 前記モル比は、少なくとも0.05または0.2以上のモル比である請求項2記載の燃料改質装置。

【請求項4】 請求項1ないし3いずれか記載の燃料改 質装置であって、

前記能力超過検出手段は、

前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出するガス流量検出手段と、

該検出された水素リッチなガスの流量が前記シフト反応 部の最大能力を超過しているかを判定する超過判定手段 とを備える燃料改質装置。

【請求項5】 前記ガス流量検出手段は、前記炭化水素 系からなる燃料の前記改質部への供給量に基づいて前記 シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検 出する手段である請求項4記載の燃料改質装置。

【請求項6】 前記請求項1ないし5いずれか記載の燃 40 料改質装置であって、

前記能力超過検出手段は、

前記シフト反応部による反応の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出する一酸化炭素濃度検出手段と、

該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記シフト反応 部に供給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最 大能力に対する超過を判定する超過判定手段とを備える 燃料改質装置。

【請求項7】 前記酸化ガス供給制御手段は、前記一酸 50

化炭素濃度検出手段により検出される一酸化炭素濃度が 所定濃度以下となるよう前記酸化ガス供給手段を制御す る手段である請求項6記載の燃料改質装置。

【請求項8】 前記シフト反応部の能力が前記シフト反応に必要な触媒を担持する触媒担持部材の容積で示されるとき、前記所定の割合は50%以下の容積である請求項1ないしていずれか記載の燃料改質装置。

【請求項9】 前記シフト反応部にシフト反応のための 触媒は銅ー亜鉛系の触媒である請求項1ないし8いずれ か記載の燃料改質装置

【請求項10】 炭化水素系からなる燃料を水素リッチ な燃料とする燃料改質方法であって、

前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質ステップと、

該改質された水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の 一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトする シフト反応ステップと、

前記改質ステップにより改質された水素リッチなガスが 前記シフト反応ステップに用いられる反応層に該反応層 の能力を超えて供給されるとき、該水素リッチなガスに 酸素を含有する酸化ガスを混和させて該反応層に供給す る酸化ガス混和ステップとを備える燃料改質方法。

【請求項11】 請求項10記載の燃料改質方法であって、

前記酸化ガス混和ステップは、

前記反応層に供給される水素リッチなガスの流量を検出し、

該検出された水素リッチなガスの流量に基づいて該水素 リッチガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、

30 該水素リッチなガスの流量に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップである燃料改質方法。

【請求項12】 請求項10記載の燃料改質方法であって、

前記酸化ガス混和ステップは、

前記シフト反応ステップ後の水素リッチなガス中の一酸 化炭素濃度を検出し、

該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記水素リッチ なガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、

該一酸化炭素濃度に基づいて前記酸化ガスを混和させる ステップである燃料改質方法。

【請求項13】 前記シフト反応ステップに用いられる 反応層の能力は前記改質ステップから供給される水素リッチなガスの最大供給量に対して50%以下である請求 項10ないし12いずれか記載の燃料改質方法。

【請求項14】 前記シフト反応ステップは、銅-亜鉛 系の触媒を用いて前記シフト反応を行なうステップであ る請求項10ないし13いずれか記載の燃料改質方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料改質装置およ

3

び燃料改質方法に関し、詳しくは、炭化水素系からなる 燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質装置および炭化 水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質 方法に関する。

#### [0002]

【従来の技術】従来、この種の燃料改質装置としては、メタノールを300~400℃の温度で反応させて水素リッチなガスに改質する改質部と、改質部により改質された水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素を200~300℃の温度で反応させて水素リッチガス中の水素の10含有率を高めるシフト反応部とを備えるものが提案されている(たとえば特開平6-24702号公報など)。この装置が二つの温度の異なる反応層を有するのは、メタノールを次式(1)と(2)によって水素リッチなガスに改質する際、式(1)が吸熱反応で反応速度も速いのに対し、式(2)は発熱反応でゆっくり進行するため、改質部だけでは十分に式(2)のシフト反応を行なえないことに基づく。

[0003] 
$$CH_3OH \rightarrow CO + 2H_2$$
 (1)  
 $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$  (2)  
[0004]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、こうした従来の燃料改質装置では、上述の式(2)のシフト反応を十分に行なうことができるよう改質部の最大能力に適応した最大能力を持つシフト反応部とされるから、装置が大型化するといった問題があった。この装置の大型化は、起動時にシフト反応部を十分に昇温させるのに多くのエネルギーと時間を要するといった問題を引き起こす。また、装置の大型化は、最大能力よりずっと小さな領域での運転では効率が低くなるという問題をも生じる。

【0005】本発明の燃料改質装置および燃料改質方法は、こうした装置の大型化によって生じる問題を解決し、コンパクトで効率の良い燃料改質装置を提供すると共に、こうしたコンパクトで効率の良い燃料改質装置とするための燃料の改質方法を提供することを目的とする。

### [0006]

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本発明の燃料改質装置は、上述の目的の少なくとも一部を 40達成するために以下の手段を採った。

【0007】本発明の燃料改質装置は、炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質装置であって、前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質部と、該改質部の最大能力に対して所定の割合を最大能力とし該改質部から供給される前記水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応部と、該シフト反応部に酸素を含有する酸化ガスを供給する酸化ガス供給手段と、前記改質部から前記シフト反応部に供

給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最大能力 に対する超過を検出する能力超過検出手段と、該超過を 検出したとき前記酸化ガス供給手段により前記シフト反 応部に前記酸化ガスが供給されるよう該酸化ガス供給手 段を制御する酸化ガス供給制御手段とを備えることを要 旨とする。

【0008】この本発明の燃料改質装置では、改質部から供給される水素リッチなガスがシフト反応部の最大能力を超えないときにはシフト反応部により上述の式

10 (2)のシフト反応により水素リッチなガスの水素の含有率を高め、水素リッチなガスがシフト反応部の最大能力を超えてシフト反応部に供給されるときには供給される酸化ガスに含有される酸素により水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素を含有率を低下させる。ここで、「所定の割合」は、こうした燃料改質装置から水素リッチな燃料の供給を受ける装置(例えば、燃料電池や水素エンジンなど)の運転特性に応じて定められるものであり、例えば、この水素リッチな燃料の供給を受ける装置を稼働したときの平均値やこの平均値より若干高めまたは低めの値としたり、または稼働時の中央値やこの中央値より若干高めまたは低めの値としたり、まではなめの値としたり、装置全体の効率から求められる値とするものも含まれる。

【0009】本発明の燃料改質装置によれば、シフト反応部を改質部の最大能力に対して所定の割合を最大能力とすることにより、シフト反応部をコンパクトなものにすることができる。この結果、起動時におけるシフト反応部の昇温に必要なエネルギーを小さくすることができると共にその時間も短くすることができる。また、シフ30ト反応部がコンパクトだから、改質部の最大能力よりずっと小さな領域で燃料改質装置が運転されたときに生じる効率の低下を防止することができ、装置全体の効率を向上させることができる。

【0010】こうした本発明の燃料改質装置において、前記酸化ガス供給制御手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素に対して該シフト反応部に供給される酸化ガスに含まれる酸素が所定のモル比となるよう前記酸化ガス供給手段を制御する手段であるものとすることもできる。こうすれば、シフト反応に対する酸化反応の割合を制限することができる。この態様の燃料改質装置において、前記モル比は、少なくとも0.05または0.2以上のモル比であるものとすることもできる。なお、このモル比は、燃料改質装置から水素リッチな燃料の供給を受ける装置が許容する一酸化炭素濃度などによって定めることもできる。【0011】また、本発明の燃料改質装置において、前

【0011】また、本発明の燃料改質装置において、則記能力超過検出手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出するガス流量検出手段と、該検出された水素リッチなガスの流量が前記シフト

ガス供給手段と、前記改質部から前記シフト反応部に供 50 反応部の最大能力を超過しているかを判定する超過判定

手段とを備えるものとすることもできる。こうすれば、シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量に基づいてシフト反応部に供給する酸化ガスを制御することができる。この態様の燃料改質装置において、前記ガス流量検出手段は、前記炭化水素系からなる燃料の前記改質部への供給量に基づいて前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出する手段であるものとすることもできる。こうすれば、炭化水素系からなる燃料の改質部への供給量から水素リッチなガスの流量がシフト反応部の最大能力を超過しているかを判定でき、こ 10の炭化水素系からなる燃料の供給量に基づいてシフト反応部に供給する酸化ガスを制御することができる。

【0012】あるいは、本発明の燃料改質装置におい て、前記能力超過検出手段は、前記シフト反応部による 反応の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出 する一酸化炭素濃度検出手段と、該検出された一酸化炭 素濃度に基づいて前記シフト反応部に供給される水素リ ッチなガスの該シフト反応部の最大能力に対する超過を 判定する超過判定手段とを備えるものとすることもでき る。こうすれば、シフト反応部による反応の後の水素リ ッチなガス中の一酸化炭素濃度を高い精度で制御するこ とができる。この態様の燃料改質装置において、前記酸 化ガス供給制御手段は、前記一酸化炭素濃度検出手段に より検出される一酸化炭素濃度が所定濃度以下となるよ う前記酸化ガス供給手段を制御する手段であるものとす ることもできる。こうすれば、シフト反応部による反応 の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を所定濃度 以下とすることができる。

【0013】さらに、本発明の燃料改質装置において、 記酸化ガス 前記シフト反応部の能力が前記シフト反応に必要な触媒 30 もできる。を担持する触媒担持部材の容積で示されるとき、前記所 にの割合は50%以下の容積であるものとすることもで 記シフト反きる。こうすればシフト反応部を半分程度の小さなもの 改質ステッにすることができる。 給量に対し

【0014】この他、本発明の燃料改質装置において、 前記シフト反応部にシフト反応のための触媒は銅-亜鉛 系の触媒であるものとすることもできる。

【0015】本発明の燃料改質方法は、炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質方法であって、前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに 40 改質する改質ステップと、該改質された水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応ステップと、前記改質ステップにより改質された水素リッチなガスが前記シフト反応ステップに用いられる反応層に該反応層の能力を超えて供給されるとき該水素リッチなガスに酸素を含有する酸化ガスを混和させて該反応層に供給する酸化ガス混和ステップとを備えることを要旨とする。

【0016】この本発明の燃料改質方法では、水素リッ スとを混和する気化部26と、水蒸気と混和した天然ガチなガスがシフト反応ステップに用いられる反応層にそ 50 スを水素を含有する水素リッチガスに改質する改質部3

の能力を超えない範囲で供給されるときにはシフト反応 ステップによる上述の式(2)のシフト反応により水素 リッチなガスの水素の含有率を高め、水素リッチなガス がシフト反応ステップに用いられる反応層にその能力を 超えて供給されるときには水素リッチなガスに酸化ガス が混和されて水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の 一部を酸化することにより水素リッチなガスの一酸化炭 素を含有率を低下させる。この結果、シフト反応ステッ プに用いる反応層をコンパクトなものとすることがで き、起動時におけるシフト反応ステップに用いる反応層 の昇温に必要なエネルギーを小さくしたり、その時間も 短くすることができる。しかも、このシフト反応ステッ プに用いる反応層がコンパクトだから、改質ステップに 用いられる反応層の最大能力からずっと小さな領域で燃 料の改質が行なわれるときに生じる効率の低下を防止す ることができ、装置全体の効率を向上させることができ

【0017】こうした本発明の燃料改質方法において、前記酸化ガス混和ステップは、前記反応層に供給される水素リッチなガスの流量を検出し、該検出された水素リッチなガスの流量に基づいて該水素リッチがガスの流量に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップであるものとしたり、あるいは、前記酸化ガス混和ステップは、前記シフト反応ステップ後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出し、該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記水素リッチなガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、該一酸化炭素濃度に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップであるものとすることとできる

【0018】また、本発明の燃料改質方法において、前記シフト反応ステップに用いられる反応層の能力は前記改質ステップから供給される水素リッチなガスの最大供給量に対して50%以下であるものとすることもできる。さらに、本発明の燃料改質方法において、前記シフト反応ステップは、銅ー亜鉛系の触媒を用いて前記シフト反応を行なうステップであるものとすることもできる。

#### [0019]

【発明の実施の形態】次に、本発明の実施の形態を実施例を用いて説明する。図1は、本発明の一実施例である燃料改質装置20の構成の概略を示す構成図である。図示するように、燃料改質装置20は燃料電池60に接続されており、燃料電池60は、燃料改質装置20により改質された燃料ガスの供給を受けて発電する。

【0020】燃料改質装置20は、水タンク22から供給される水を気化させると共に気化させた水と天然ガスタンク24から供給されるメタンを主成分とする天然ガスとを混和する気化部26と、水蒸気と混和した天然ガスを水麦を全在する水麦は、サガスに改質する改質部3

0と、水素リッチガスに含まれる一酸化炭素に対して上述の式(2)のシフト反応を行なうシフト反応部32 と、シフト反応部32によってシフトされなかった一酸 化炭素を選択的に酸化する選択酸化部34と、燃料改質 装置20全体を制御する電子制御ユニット50とを備える。

【0021】水タンク22には水を気化部26に供給するためのボンプ36が設置されており、このボンプ36は、電子制御ユニット50と信号ラインで接続されており、電子制御ユニット50による駆動制御を受けるよう 10になっている。天然ガスタンク24は、高圧タンクであり、その出口には天然ガスの流出量を調節可能な流量計付電磁弁38が取り付けられている。この流量計付電磁弁38のアクチュエータ40は信号ラインで電子制御ユニット50に接続されており、電子制御ユニット50に接続されており、電子制御ユニット50による駆動制御を受けるようになっている。

【0022】気化部26の内部には、気化部26内の温度を高めるための燃焼部28が設けられており、天然ガスタンク24から供給される天然ガスの一部を燃焼部28に導入し燃焼することでその熱源としている。このた20め、天然ガスの気化部26への供給管には燃焼部28に供給するための分岐管が取り付けられており、この分岐管には天然ガスの燃焼部28への供給量を制御するための電磁弁42が取り付けられている。この電磁弁42のアクチュエータ44も電子制御ユニット50に信号ラインで接続されており、電子制御ユニット50による駆動制御を受けるようになっている。

【0023】また、気化部26は電子制御ユニット50に信号ラインで接続されており、電子制御ユニット50によって気化部26の内部に設置された図示しない温度 30計により検出される気化部26内部の温度が600~800℃の範囲内で設定された温度(例えば650℃など)となるよう制御を受けている。温度制御の実際は、燃焼部28のオンオフ制御と分岐管に取り付けられた電磁弁42の開閉制御とによって行なわれる。

【0024】改質部30には、ニッケル系の触媒を担持したペレットが充填されている。改質部30も電子制御ユニット50と信号ラインで接続されており、その温度が600~800℃の範囲内で設定された温度(例えば800℃など)となるよう電子制御ユニット50による40制御を受けている。なお、制御の実際は、改質部30内部に設置された図示しない温度計により検出される改質部30の温度が前述の温度となるよう改質部30に設置された図示しない熱交換器の媒体の流動をコントロールすることによってもできるが、実施例では、気化部26の温度制御により改質部30の温度制御をも行なうものとした。改質部30に充填された触媒上では、次式(3)および(4)の反応により天然ガスを水素リッチガスに改質する。式(4)は上述の式(2)と同一であ

り、発熱反応であるから、改質部30の温度(800

℃)ではその熱平衡の関係で反応率は50%程度となる。この結果、改質部30により改質された水素リッチガスは、10%程度の一酸化炭素を含有する。

$$[0025]CH_4+H_2O\rightarrow 3H_2+CO$$
 (3)  
 $CO+H_2O\rightarrow H_2+CO_2$  (4)

【0026】シフト反応部32には、上式(4)のシフ ト反応を行なうために用いる銅-亜鉛系の触媒を担持し たペレットが充填されており、その容積は、改質部30 が最大能力の40%の能力で運転されたときに最大能力 に達するように設計されている。即ち、シフト反応部3 2は、改質部30が最大能力の40%までで運転される ときには改質部30から供給される水素リッチなガスに 含まれる一酸化炭素を上式 (4) のシフト反応でシフト させて水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所定濃度 (例えば1%) 以下にすることができるが、最大能力の 40%以上で改質部30が運転されると改質部30から 供給される水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所定 濃度以下にすることができない、という触媒容積として 設計されているのである。シフト反応部32への水素リ ッチガスの供給量とシフト反応部32出口での水素リッ チガス中の一酸化炭素の濃度との関係の一例を図2に示 す。図中「負荷」はシフト反応部32への水素リッチガ スの供給量を改質部30の最大能力を100%として表 示したものである。したがって、負荷が40%のときが シフト反応部32の最大能力であり、これより負荷が大 きくなると、水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度は増 加する。

【0027】シフト反応部32の水素リッチガスの供給管には分岐管が設けられており、この分岐管には水素リッチガスに空気を圧入するブロワ46が設置されている。水素リッチガスに空気が圧入されてシフト反応部32では上式(4)のシフト反応の他に空気中に含まれる酸素によって次式(5)の酸化反応も行なわれる。したがって、改質部30がその最大能力の40%を越えて運転されるときに、ブロワ46を駆動して水素リッチガスに空気を混入させれば水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所定濃度以下にすることができる。

【0028】CO+1/2O2→CO2 (5) 40 【0029】上述の水素リッチガスへの空気の混入量は、実験の結果からモル比[O]/[CO]で0.05 以上で好ましくは0.2以上がよい。実験としては、C u/ZnOを触媒として担持した直径3mmで長さが3 mmの円筒形のペレットを反応層に10cm³充填して 触媒温度を200℃とし、これに水素が80%、二酸化 炭素9.78%、一酸化炭素10.09%のモデルガス をモデルガス:水蒸気=70:30となるよう加湿した ガスを833cm³/minの流量で供給するものを用い、モデルガスへ空気をモル比[O]/[CO]で0、 50 0.125,0.25で混入するものを用いた。この実 験の結果は、モデルガスへの空気の混入量がモル比 [O] / [CO] で0, 0. 125, 0. 25に対し、 反応層出口でのモデルガス中の一酸化炭素の濃度は、それぞれ3. 1%, 1. 47%, 1. 05%であった。この実験結果から、一酸化炭素濃度を低減するという効果 はモル比 [O] / [CO] で0. 05以上で奏し、この モル比で0. 2以上とすれば一酸化炭素濃度を1%程度 まで低減することができる。

【0030】シフト反応部32も電子制御ユニット50 に信号ラインによって接続されており、上式(4)のシ 10 フト反応を熱平衡により右側に進行させるために、電子 制御ユニット50によりその温度が200~400℃の 範囲内の温度となるよう制御されている。

【0031】選択酸化部34には、水素の酸化反応に優先して上式(5)の酸化反応を行なうための白金ールテニウム系の触媒を担持したペレットが充填されており、改質部30やシフト反応部32と同様に電子制御ユニット50に信号ラインで接続されており、その温度が100~200℃の範囲内の温度となるよう電子制御ユニット50による制御を受けている。なお、実施例では、シフト反応部32と選択酸化部34との間に、水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を検出する一酸化炭素濃度計33と、水素リッチガスに空気を混入させるブロワ48とが設けられており、一酸化炭素濃度計33により検出された一酸化炭素の濃度に応じてブロワ48により水素リッチガスに空気を混入できるようになっている。一酸化炭素濃度計33もブロワ48も電子制御ユニット50に信号ラインで接続されている。

【0032】電子制御ユニット50は、CPU52を中心として構成されたマイクロコンピュータであり、CPU52により実行される処理プログラムや各種データを記憶したROM54と、データを一時的に記憶するRAM56と、各種データの入力および制御信号の出力を行なう入出力ボート58とを備える。入出力ボート58には、流量計付電磁弁38からの天然ガスの重量流量、気化部26や改質部30、シフト反応部32、選択酸化部34に設置された図示しない温度計からの各部の温度、

一酸化炭素濃度計33からの水素リッチガス中の一酸化炭素濃度などが入力され、ポンプ36への駆動信号、流量計付電磁弁38のアクチュエータ40への駆動信号、電磁弁42のアクチュエータ44への駆動信号、気化部26の燃焼部28へのオンオフ信号、ブロワ46やブロワ48への駆動信号が出力されている。

【0033】こうして構成された実施例の燃料改質装置20は、図3に例示する空気供給量制御ルーチンを実行することにより、シフト反応部32へ供給される水素リッチガスの空気の混入量を制御している。なお、この空気供給量制御ルーチンは所定時間毎(例えば、10ms毎)に繰り返し実行されている。

【0034】この空気供給量制御ルーチンが実行される 50 燃料電池60とを車載する場合には、上述の効果は大き

と、CPU52は、まず流量計付電磁弁38により検出 される天然ガスの流出量を天然ガス供給量QMとして読 み込む処理を実行する(ステップS100)。続いて、 読み込んだ天然ガス供給量QMを閾値Qrefと比較す る (ステップS110)。 なお、 閾値Qre f はシフト 反応部32の最大能力に相当する値として設定されてい る。 天然ガス供給量QMが閾値Qref以下のときに は、シフト反応部32の最大能力を超えていないと判断 しプロワ46による水素リッチガスへの空気の供給量Q Aに値0を設定し(ステップS120)、天然ガス供給 量QMが閾値Qrefより大きいときには、シフト反応 部32の最大能力を超えていると判断してブロワ46に よる水素リッチガスへの空気の供給量QAに天然ガス供 給量QMに基づいて定まる値(例えば、前述のモル比 [O] / [CO] で0.2となる空気量の値)を設定す る (ステップS130)。そして、シフト反応部32に 供給される水素リッチガスに混入される空気量が供給量 QAとなるようプロワ46を駆動して(ステップS14 0)、本ルーチンを終了する。

1.0

【0035】このように、天然ガス供給量QMがシフト 反応部32の最大能力に相当する値以下のときには、ブロワ46による空気の供給量QAを値0とすることにより、シフト反応部32は通常のシフト反応により一酸化 炭素を水素と二酸化炭素とにシフトし、天然ガス供給量 QMがシフト反応部32の最大能力に相当する値を越えるときには、ブロワ46によりシフト反応部32に供給される水素リッチガスに天然ガス供給量QMに応じた空気の供給量QAを供給することにより、シフト反応部32で通常のシフト反応に加えて一酸化炭素の機化反応を行なって水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を低減するのである。

【0036】以上説明した実施例の燃料改質装置20に よれば、水素リッチガスがシフト反応部32にその最大 能力に至る範囲内で供給されたときには通常のシフト反 応により水素リッチガス中の水素の含有率を高めると共 に水素リッチガス中の一酸化炭素を所定濃度以下まで低 滅し、最大能力を超えて供給されたときには空気を混入 させてシフト反応に加えて酸化反応を行なうことにより 水素リッチガス中の水素の含有率を高めると共に水素リ ッチガス中の一酸化炭素を所定濃度以下まで低減するこ とができる。この結果、シフト反応部32を小さなもの とすることができるから、燃料改質装置20を起動する 際にシフト反応部32を昇温するために必要なエネルギ ーを小さくすることができると共にその時間も短くする ことができる。また、シフト反応部32が小さいから、 改質部30をその能力よりずっと小さな領域で燃料改質 装置20を運転するときでも燃料改質装置20の効率を 低下させることがなく、燃料改質装置20全体の効率を 向上させることができる。こうした燃料改質装置20と

くクローズアップされる。この場合、車両の運転特性に もよるが、車両に必要な最大エネルギーに対して駆動の 平均エネルギーを40~50%程度と考えることができ るから、シフト反応部32の最大能力を改質部30の最 大能力の40~50%として設計することができる。

【0037】実施例の燃料改質装置20では、天然ガス タンク24から流出する天然ガスの流量を天然ガスの供 給量として検出することにより、シフト反応部32に供 給される水素リッチガスの供給量がシフト反応部32の 最大能力を超過しているかを判定し、天然ガスの供給量 10 部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素濃度COを に応じた空気をシフト反応部32に供給される水素リッ チガスに混入させたが、改質部30とシフト反応部32 との間に水素リッチガスの流量を検出する流量計を設 け、この流量計により検出された水素リッチガスの流量 に基づいてシフト反応部32への供給が最大能力を超過 しているか否かを判定すると共に水素リッチガスに混入 させる空気量を設定するものとしてもよい。

【0038】また、シフト反応部32と選択酸化部34 との間に設置された一酸化炭素濃度計33により検出さ 化炭素濃度COに基づいてシフト反応部32に供給され る水素リッチガスに混入させる空気量を設定するものと してもよい。この場合、図3の空気供給量制御ルーチン に代えて図4に例示する空気供給量制御ルーチンを実行 すればよい。以下、この図4のルーチンについて簡単に 説明する。

【0039】図4の空気供給量制御ルーチンが実行され ると、CPU52は、まず、一酸化炭素濃度計33によ り検出されるシフト反応部32出口の水素リッチガス中 の一酸化炭素濃度COを読み込み (ステップS20 0)、読み込んだ一酸化炭素濃度COを閾値C1および 閾値C2と比較する(ステップS210, S220)。 閾値C 2はシフト反応部3 2出口の水素リッチガス中の 一酸化炭素の許容濃度として設定されるものであり、閾 値C1は水素リッチガスへの空気供給量QAの増減を頻 繁に行なわないようヒステリシスを持たせるために導入 された閾値C2より少し小さい値として設定されるもの である。一酸化炭素濃度COが閾値C1と閾値C2との 間にあるときには空気供給量QAの変更は行なわず、一 酸化炭素濃度COが閾値C2より大きいときには空気供 40 給量QAを△Qだけ増加し(ステップS220)、一酸 化炭素濃度COが閾値C1より小さいときには空気供給 量QAを∆Qだけ減少する(ステップS230)。ここ で、増減量△Qは燃料改質装置20の規模や図4のルー チンが実行される繰り返し頻度などによって定められる ものである。なお、ステップS230でΔQだけ減じた 空気供給量QAが負の値となるときには空気供給量QA に値を設定する(ステップS240, S250)。そし て、ブロワ46によりシフト反応部32に供給される水 素リッチガスに混入される空気が空気供給量QAとなる 50 【符号の説明】

ようブロワ46を駆動する(ステップS260)。

12

【0040】こうした図4の空気供給量制御ルーチンを 実行する変形例の燃料改質装置20によれば、燃料改質 装置20の起動後に初めて一酸化炭素濃度計33により 検出される一酸化炭素濃度COが閾値C2を越えるとき に、シフト反応部32の最大能力を超えて水素リッチガ スが供給されていると判断することができる。しかも、 一酸化炭素濃度計33により検出される一酸化炭素濃度 COによってフィードバック制御するから、シフト反応 確実に所望の濃度以下にすることができる。

【0041】実施例の燃料改質装置20では、改質する 燃料としてメタンを主成分とする天然ガスを用いたが、 エタンなどの飽和系の炭化水素やエチレンなどの不飽和 系の炭化水素の他、メタノールなどの炭化水素系のアル コールなどを改質する燃料としてもよい。この場合、流 量計付電磁弁38に代えてそれぞれの重量流量を計測で きる計器を設置すると共に、改質部30に充填される触 媒を改質する燃料の改質反応に適するものに変更し、気 れるシフト反応部32出口での水素リッチガス中の一酸 20 化部26や改質部30の温度も改質する燃料に適応する 温度とすればよい。

> 【0042】また、実施例の燃料改質装置20では、ブ ロワ46によりシフト反応部32に供給される水素リッ チガスに空気を混入させたが、酸素を含有するものであ ればよいから種々の酸素を含有する酸化ガスを用いるこ とができる。

【0043】さらに、実施例の燃料改質装置20では、 燃料改質装置20により改質された改質燃料である水素 リッチガスを燃料電池60に供給するものとしたが、燃 30 料電池60の他、水素を燃料とする水素エンジンなど他 の水素消費機関に供給するものとしてもよい。この場 合、シフト反応部32の触媒容積は、水素消費機関の使 用特性などによって定めることができる。

【0044】以上、本発明の実施の形態について実施例 を用いて説明したが、本発明はこうした実施例に何等限 定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲 内において、種々なる形態で実施し得ることは勿論であ る。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例である燃料改質装置20の 構成の概略を示す構成図である。

【図2】 水素リッチガスの供給量とシフト反応部32 出口の水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度との関係の 一例を示すグラフである。

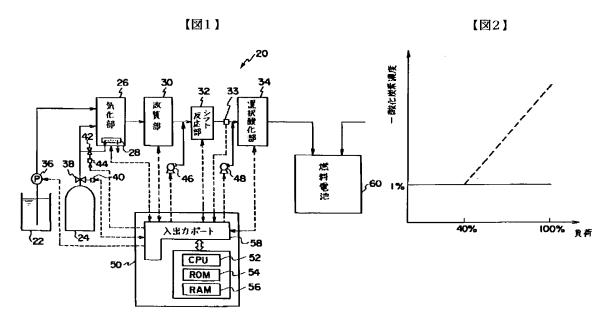
【図3】 実施例の燃料改質装置20のCPU52で実 行される空気供給量制御ルーチンの一例を示すフローチ ャートである。

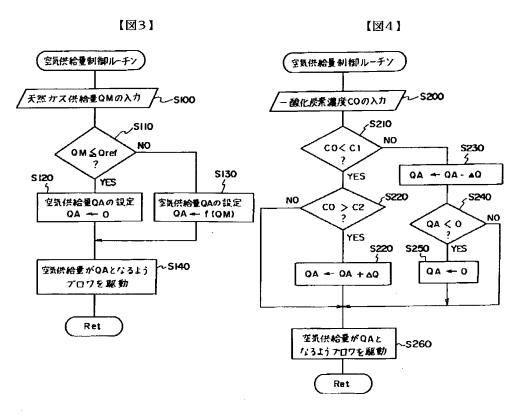
【図4】 変形例の空気供給量制御ルーチンの一例を示 すフローチャートである。

20 燃料改質装置、22 水タンク、24 天然ガスタンク、26 気化部、28 燃焼部、30 改質部、32 シフト反応部、33 一酸化炭素濃度計、34選択酸化部、36 ボンプ、38 流量計付電磁弁、4

0 アクチュエータ、42 電磁弁、44 アクチュエータ、46 ブロワ、48 ブロワ、50 電子制御ユニット、52 CPU、54 ROM、56 RAM、58 入出力ポート、60 燃料電池。

14





フロントページの続き

F ターム(参考) 4G040 EA03 EA06 EB18 EB42 EB43 EC01 5H027 AA02 BA01 BA17 KK21 KK31